This Page Is Inserted by IFW Operations and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning documents will not correct images, please do not report the images to the Image Problem Mailbox.

THIS PAGE BLANK (USPTO)



From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

WEGE, Volker et al

Assistant Commissioner for Patents United States Patent and Trademark Office

Box PCT Washington, D.C.20231 ETATS-UNIS D'AMERIQUE

Date of mailing (day/month/year)

11 September 2000 (11.09.00)

International application No.
PCT/EP00/00576

International filing date (day/month/year)
26 January 2000 (26.01.00)

Applicant

in its capacity as elected Office

Applicant's or agent's file reference
Le A 33 510-WO

Priority date (day/month/year)
05 February 1999 (05.02.99)

1.	The designated Office is hereby notified of its election made:	
	X in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:	₹ - •
	01 August 2000 (01.08.00)	
	in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:	
2.	The election X was	
	was not	
	made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 appli Rule 32.2(b).	ies, within the time limit under

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

Pascal Piriou

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PCT
TORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales Büro
INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 7:

C08F 8/04, 8/00

(11) Internationale Veröffentlichungsnummer:

WO 00/46259

A1

(43) Internationales

Veröffentlichungsdatum:

10. August 2000 (10.08.00)

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/EP00/00576

(22) Internationales Anmeldedatum: 26. Januar 2000 (26.01.00)

(30) Prioritätsdaten:

199 04 612.3

5. Februar 1999 (05.02.99)

DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE). TEIJIN LIMITED [JP/JP]; 6-7, Minamihommachi 1-chome, Chuo-ku, Osaka-shi, Osaka 541-0054 (JP).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): WEGE, Volker [DE/DE]; Bismarckplatz 45, D-47799 Krefeld (DE). DOUZINAS, Konstadinos [GR/DE]; An der Ruthen 1, D-51061 Köln (DE). RECHNER, Johann [DE/DE]; Friedrich-Kramer-Str. 2, D-47906 Kempen (DE).

(74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGE-SELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).

(81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht.

(54) Title: METHOD FOR HYDROGENATING AROMATIC POLYMERS IN THE PRESENCE OF SPECIAL CATALYSTS

(54) Bezeichnung: VERFAHREN ZUR HYDRIERUNG AROMATISCHER POLYMERE IN GEGENWART SPEZIELLER **KATALYSATOREN**

(57) Abstract

A method for hydrogenating aromatic polymers in the presence of catalysts, whereby a metal or mixture of metals from sub-group VIII of the periodic table of elements is used together with an aluminium oxide support and the pore volume of the pore diameter of the catalyst ranges from 1000-10000 Å when measured according to quicksilver porosimetry, generally representing 100-15 % in relation to the overall pore volume when measured according to posimetry.

(57) Zusammenfassung

Verfahren zur Hydrierung aromatischer Polymere in Gegenwart von Katalysatoren, wobei als Katalysator ein Metall oder Gemisch von Metallen der VIII. Nebengruppe des Periodensystems zusammen mit einem Träger aus Aluminiumoxid eingesetzt wird und das Porenvolumen der Porendurchmesser des Katalysators zwischen 1000 - 10000 Å, gemessen nach der Quecksilber-Porosimetrie, im allgemeinen 100 - 15 %, bezogen auf das gesamte Porenvolumen, gemessen nach der Quecksilber-Porosimetrie, beträgt.

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
ΑT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
ΑU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
ΑZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Моласо	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland		Republik Mazedonien	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		Amerika
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Кепіа	NL	Niederlande	VN	Vietnam
СН	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik	NZ	Neuseeland	zw	Zimbabwe
CM	Kamerun		Korea	PL	Polen		Zimozowe
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		•
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

WO 00/46259 - 1 - PCT/EP00/00576

Verfahren zur Hydrierung aromatischer Polymere in Gegenwart spezieller Katalysatoren

Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Hydrierung aromatischer Polymere, welches dadurch gekennzeichnet ist, daß Metalle der VIII. Nebengruppe zusammen mit einem Träger aus Aluminiumoxid vorliegen. Die Katalysatoren besitzen eine spezielle Porengrößenverteilung. Dadurch lassen sich aromatische Polymere bezüglich ihrer aromatischen Einheiten vollständig und ohne signifikanten Abbau der Molekulargewichte hydrieren.

Die Hydrierung aromatischer Polymere ist bereits bekannt. DE-AS 1 131 885 beschreibt die Hydrierung von Polystyrol in Gegenwart von Katalysatoren und Lösungsmittel. Als Lösungsmittel werden aliphatische und cycloaliphatische Kohlenwasserstoffe, Ether, Alkohole und aromatische Kohlenwasserstoffe erwähnt. Als bevorzugt wird ein Gemisch aus Cyclohexan und Tetrahydrofuran genannt. Siliziumdioxid und Aluminiumoxidträger der Katalysatoren werden allgemein erwähnt, deren physikalisch chemische Struktur wird jedoch nicht beschrieben.

EP-A-322 731 beschreibt die Herstellung von vorwiegend syndiotaktischen Polymeren auf Basis von Vinylcyclohexan, wobei ein Styrol-basierendes Polymer in Gegenwart von Hydrierungskatalysatoren und Lösungsmitteln hydriert wird. Als Lösungsmittel werden cycloaliphatische und aromatische Kohlenwasserstoffe, nicht jedoch Ether, erwähnt.

Die in DE 196 24835 (= EP-A 814 098) zur Hydrierung von Polymeren mit Ruthenium- oder Palladiumkatalysatoren, bei denen das Aktivmetall auf einem porösen Träger aufgebracht ist, beschreibt die Hydrierung von olefinischen Doppelbindungen von Polymeren.

25

15

Aromatische Bereiche werden zu weniger als 25 % und im allgemeinen in einem Bereich von 0 bis ungefähr 7 % hydriert. Die Auswahl der Lösungsmittel ist dabei nicht kritisch.

Ferner ist bekannt (WO 96/34896 = US-A-5,612,422), daß kleine Porendurchmesser (200-500 Å) und große Oberflächen (100-500 m²/g) von Siliziumdioxid unterstützten Katalysatoren bei der Hydrierung von aromatischen Polymeren zu unvollständiger Hydrierung und zu Abbau der Polymerkette führen können. Die Verwendung spezieller Siliziumdioxid unterstützter Hydrierkatalysatoren (WO 96/34896) lassen eine annähernd vollständige Hydrierung bei ca. 20 % igem Abbau der Molekulargewichte zu. Die genannten Katalysatoren weisen eine spezielle Porengrößenverteilung des Siliziumdioxids auf, die dadurch charakterisiert ist, daß 98 % des Porenvolumens einen Porendurchmesser größer 600 Å haben. Die genannten Katalysatoren haben Oberflächen zwischen 14-17 m²/g und mittlere Porendurchmesser von 3800-3900 Å.

Verdünnte Polystyrollösungen in Cyclohexan mit einer Konzentration zwischen 1% bis maximal 8 % werden zu Hydriergraden größer 98 % und kleiner 100 % hydriert.

Die in den genannten Schriften beschriebenen Beispiele zeigen bei Polymerkonzentrationen kleiner 2 % einen Abbau der absoluten Molekulargewichte des hydrierten Polystyrols. Generell führt Molekulargewichtsabbau zu einer Verschlechterung der mechanischen Eigenschaften eines hydrierten Polystyrols.

20

25

30

Das Vergleichbeispiel gemäß WO 96/34896 eines kommerziell verfügbaren Katalysators 5 % Rh/Al₂O₃ (Engelhard Corp., Beachwood, Ohio, USA) führt zu einem Hydriergrad von 7 % und zeigt die geringere Aktivität des Aluminiumoxidträgers gegenüber dem Siliziumdioxid unterstützten Katalysator.

Überraschenderweise wurde nun gefunden, daß bei der Verwendung spezieller Katalysatoren, welche Metalle der VIII. Nebengruppe zusammen mit einem Träger aus Aluminiumoxid, wobei der Katalysator dadurch definiert ist, daß höchstens 10 % des Porenvolumens einen Porendurchmesser kleiner 600 Å aufweisen, einen mittleren

Porendurchmesser von größer 1000 Å, eine Oberfläche von größer 3 m²/g besitzen und eine bestimmte Porengrößenverteilung aufweisen, aromatische Polymere vollständig und ohne signifikanten Abbau der Molekulargewichte hydrieren.

Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Hydrierung aromatischer Polymere in Gegenwart von Katalysatoren, wobei der Katalysator ein Metall oder Gemisch von Metallen der VIII. Nebengruppe des Periodensystems zusammen mit einem Träger aus Aluminiumoxid ist und das Porenvolumen der Porendurchmesser des Katalysators zwischen 1000 - 10000 Å, gemessen nach der Quecksilber-Porosimetrie, im allgemeinen 100 - 15 %, bevorzugt 90 - 20 % und ganz besonders bevorzugt 80 - 25 %, insbesondere 70 bis 30 %, bezogen auf das gesamte Porenvolumen, gemessen nach der Quecksilber-Porosimetrie, beträgt.

Der mittlere Porendurchmesser beträgt, bestimmt nach Quecksilber-Porosimetrie, größer 1000 Å.

Die Quecksilbermethode ist jedoch nur hinreichend genau für Poren, die größer als 60 Å sind. Porendurchmesser kleiner 600 Å werden daher durch Stickstoffsorption nach Barret, Joyner, Halenda bestimmt (DIN 66 134).

20

15

Die Katalysatoren weisen ein Porenvolumen, gemessen nach der Stickstoffsorption von kleiner 10 %, bevorzugt kleiner 5 %, für Porendurchmesser kleiner 600 Å auf. Das Porenvolumen, gemessen nach der Stickstoffsorption, bezieht sich auf das gesamte Porenvolumen, gemessen nach der Quecksilber-Porosimetrie.

25

30

Die Bestimmung des mittleren Porendurchmessers und der Porengrößenverteilung erfolgt durch Quecksilber-Porosimetrie gemäß DIN 66 133.

Der mittlere Porendurchmesser beträgt im allgemeinen 1000 Å bis 10000 Å, vorzugsweise 2000 Å bis 7000 Å, ganz besonders bevorzugt 2500 Å bis 6000 Å.

Methoden zur Charakterisierung von Hydrierkatalysatoren werden z.B. in WO 96/34896 (=US-A-5,612,422) und Applied Heterogenous Catalysis, Institute Français du Petrole Publication, Seite 189-237 (1987) beschrieben.

Die Katalysatoren bestehen aus Metallen der VIII. Nebengruppe, welche zusammen mit einem Träger aus Aluminiumoxid vorliegen.

10

20

Aluminiumoxide mit der allgemeinen Summenformel Al_2O_3 treten in verschiedenen Modifikationen auf. Man unterscheidet zum Beispiel das hexagonale α - Al_2O_3 und das kubisch flächenzentriertkristallisierte γ - Al_2O_3 . Unter β - Al_2O_3 versteht man eine Gruppe von Aluminiumoxiden, die kleine Mengen Fremd-Ionen im Kristallgitter enthalten. Es existieren weitere spezielle Modifikationen sowie zahlreiche Übergangsformen zwischen den Aluminiumhydroxiden und Aluminiumoxiden.

Die Oberfläche des Katalysators wird nach BET (Brunauer, Emmett und Teller) Verfahren durch Stickstoff Adsorption, gemäß DIN 66 131 und DIN 66 132 bestimmt.

Die spezifischen Stickstoff-Oberflächen (BET) betragen im allgemeinen größer $3 \text{ m}^2/\text{g}$, bevorzugt $5 \text{ m}^2/\text{g}$ bis $80 \text{ m}^2/\text{g}$, besonders bevorzugt $8 \text{ m}^2/\text{g}$ bis $60 \text{ m}^2/\text{g}$.

Verwendet werden im allgemeinen Metalle der VIII. Nebengruppe, vorzugsweise Nickel, Platin, Ruthenium, Rhodium, Palladium, ganz besonders bevorzugt Platin und Palladium.

- Der Metallgehalt beträgt, bezogen auf das Gesamtgewicht des Katalysators, im allgemeinen 0,01 bis 80 %, vorzugsweise 0,05 bis 70 %.
- Der 50 % Wert der kumulativen Verteilung der Partikelgröße beträgt im diskontinuierlich betriebenen Prozeß im allgemeinen 0.1 μm bis 200 μm, vorzugsweise 1 μm bis 100 μm, ganz besonders bevorzugt 3 μm bis 80 μm.

WO 00/46259 - 5 - PCT/EP00/00576

Übliche Lösungsmittel für Hydrierreaktionen sind aliphatische oder cycloaliphatische Kohlenwasserstoffe, aliphatische oder cycloaliphatische gesättigte Ether oder deren Gemische, z.B. Cyclohexan, Methylcyclopentan, Methylcyclohexan, Ethylcyclohexan, Cyclooctane, Cycloheptan, Dodecan, Dixoan, Diethylenglycoldimethylether, Tetrahydrofuran, Isopentan, Decahydronaphthalin.

Werden aliphatische oder cycloaliphatische Kohlenwasserstoffe als Lösungsmittel verwendet, so enthalten diese vorzugsweise Wasser in einer Menge im allgemeinen von 0,1 ppm bis 500 ppm, vorzugsweise 0,5 ppm bis 200 ppm, ganz besonders bevorzugt 1 ppm bis 150 ppm, zum gesamten Lösungsmittel.

Das erfindungsgemäße Verfahren führt im allgemeinen zu einer praktisch vollständigen Hydrierung der aromatischen Einheiten. In der Regel ist der Hydriergrad ≥ 80 %, vorzugsweise ≥ 90 %, ganz besonders bevorzugt ≥ 99 % bis 100 %. Der Hydriergrad läßt sich beispielsweise durch NMR oder UV-Spektroskopie bestimmen. Das erfindungsgemäße Verfahren führt ganz besonders bevorzugt zu hydrierten aromatischen Polymeren, insbesondere zu Polyvinylcyclohexan, wobei die Menge an Diaden mit syndiotaktischer Konfiguration größer 50,1 % kleiner 74 %, insbesondere 52 bis 70 %, beträgt.

20

25

30

15

5

10

Als Ausgangsstoffe werden aromatische Polymere eingesetzt, welche beispielsweise ausgewählt sind aus gegebenenfalls im Phenylring oder an der Vinylgruppe substituiertem Polystyrol oder Copolymere davon mit Monomeren, ausgewählt aus der Gruppe der Olefine, (Meth)acrylate oder Gemische davon. Weitere geeignete Polymere sind aromatische Polyether insbesondere Polyphenylenoxid, aromatische Polycarbonate, aromatische Polyester, aromatische Polyamide, Polyphenylene, Polyphenylene, Polyphenylene, Polyphenylenethinylene, Polyphenylensulfide, Polyaryletherketone, aromatische Polysulfone, aromatische Polyethersulfone, aromatische Polyimide sowie deren Mischungen, Copolymere, gegebenenfalls Copolymere mit aliphatischen Verbindungen.

WO 00/46259 - 6 - PCT/EP00/00576

Als Substituenten im Phenylring kommen C₁-C₄-Alkyl, wie Methyl, Ethyl, C₁-C₄-Alkoxy, wie Methoxy, Ethoxy, ankondensierte Aromaten, die über ein Kohlenstoffatom oder zwei Kohlenstoffatome mit dem Phenylring verbunden sind, mit Phenyl, Biphenyl, Naphthyl in Frage.

5

Als Substituenten an der Vinylgruppe kommen C_1 - C_4 -Alkyl, wie Methyl, Ethyl, noder iso-Propyl in Frage, insbesondere Methyl in α -Position.

Als olefinische Comonomere kommen Ethylen, Propylen, Isopren, Isobutylen Butadien, Cyclohexadien, Cyclohexen, Cyclopentadien, gegebenenfalls substituierte Norbornene, gegebenenfalls substituierte Dicyclopentadiene, gegebenenfalls substituierte
Tetracyclododecene, gegebenenfalls substituierte Dihydrocyclopentadiene,

C₁-C₈-, vorzugsweise C₁-C₄-Alkylester der (Meth)acrylsäure, vorzugsweise Methyl- und Ethylester

C₁-C₈-, vorzugsweise C₁-C₄-Alkylether des Vinylalkohols, vorzugsweise Methyl und Ethylether,

C₁-C₈-, vorzugsweise C₁-C₄-Alkylester des Vinylalkohols, vorzugsweise Vinylacetat,

Derivate der Maleinsäure, vorzugsweise Maleinsäureanhydrid, Derivate des Acrylnitrils, vorzugsweise Acrylnitril und Methacrylnitril in Frage.

25

30

15

Bevorzugte Polymere sind Polystyrol, Polymethylstyrol, Copolymere aus Styrol und mindestens einem weiteren Monomer, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus α -Methylstyrol, Butadien, Isopren, Acrylnitril, Methylacrylat, Methylmethacrylat, Maleinsäureanhydrid und Olefine wie beispielsweise Ethylen und Propylen. In Frage kommen beispielsweise Copolymere aus Acrylnitril, Butadien und Styrol, Copoly-

5

10

15

mere aus Acrylester, Styrol und Acrylnitril, Copolymere aus Styrol und α -Methylstyrol und Copolymere aus Propylen, Dien und Styrol.

Die aromatischen Polymere haben im allgemeinen Molekulargewichte (Gewichtsmittel) Mw von 1000 bis 10,000,000, vorzugsweise von 60000 bis 1000000, besonders bevorzugt 70000 bis 600000, insbesondere 70 000 bis 480 000, bestimmt durch Lichtstreuung.

Die Polymere können eine lineare Kettenstruktur besitzen als auch durch Co-Einheiten Verzweigungsstellen aufweisen (z.B. Propfcopolymere). Die Verzweigungszentren beinhalten z.B. sternförmige Polymere oder andere geometrische Formen der primären, sekundären, tertiären, ggf. quartären Polymerstruktur.

Die Copolymere können sowohl statistisch, alternierend als auch als Blockcopolymere vorliegen.

Blockcopolymere beinhalten Di-Blöcke, Tri-Blöcke, Multi-Blöcke und sternförmige Blockcopolymere.

Die Ausgangspolymere sind allgemein bekannt (z.B. WO 94/21694).

Die einzusetzende Menge an Katalysator ist beispielsweise in WO 96/34896 beschrieben.

Die einzusetzende Menge des Katalysators hängt von dem auszuführenden Prozeß ab; dieser kann kontinuierlich, halb-kontinuierlich oder diskontinuierlich durchgeführt werden.

Im kontinuierlichen System ist die Reaktionszeit wesentlich kürzer; sie wird von den Abmessungen des Reaktionsgefäßes beeinflußt. Bei der kontinuierlichen Abeitsweise sind das Rieselsystem und das Sumpfsystem, beide mit fest angeordneten Katalysa-

toren, ebenso möglich wie ein System mit suspendiertem und z.B. im Kreis geführten Katalysator. Die festangeordneten Katalysatoren können in Tablettenform oder als Extrudate vorliegen.

Die Polymerkonzentrationen, bezogen auf das Gesamtgewicht aus Lösungsmittel und Polymer betragen im diskontinuierlichen Prozeß im allgemeinen 80 bis 1, vorzugsweise 50 bis 10, insbesondere 40 bis 15 Gew.-%.

Die Reaktion wird im allgemeinen bei Temperaturen zwischen 0 und 500°C, vorzugsweise zwischen 20 und 250°C, insbesondere zwischen 60 und 220°C, durchgeführt.

15

20

Die Reaktion wird im allgemeinen bei Drücken von 1 bar bis 1000 bar, vorzugsweise 20 bis 300 bar, insbesondere 40 bis 200 bar, durchgeführt.

Der Palladium-Katalysator kann bei vergleichbarer Aktivität sowohl reduziert als auch unreduziert in der betreffenden Reaktion eingesetzt werden. Für ein technisches Verfahren ist es weitaus günstiger den Katalysator unreduziert einzusetzen und keinen zusätzlichen teuren Reduktionsschritt des Katalysators wie in WO 96/34 896 durchzuführen.

WO 00/46259 - 9 - PCT/EP00/00576

Beispiele:

Durch Lichtstreuung werden die absoluten Molgewichte \overline{M} w (Gewichtsmittel) des Ausgangspolymers und des hydrierten Produktes bestimmt. Membranosmose liefert die absoluten Molekulargewichte \overline{M} n (Zahlenmittel). In dem Beispiel 2 entspricht der relative Wert \overline{M}_w der GPC-Messung (Gel-Permeations-Chromatographie, Tetrahydrofuran als Elutionsmittel) gegenüber Polystyrolstandards den ermittelten absoluten Molekulargewichten des eingesetzten Polystyrols.

Beispiele 1 und 2

Die in den Beispielen verwendeten Katalysatoren sind in Tabelle 1 charakterisiert.

Ein 11-Autoklave wird mit Inertgas gespült. Die Polymerlösung und gegebenenfalls der unreduzierte Katalysator werden zugegeben (Tabelle 2). Nach dem Verschließen wird mehrmals mit Schutzgas, dann mit Wasserstoff beaufschlagt. Nach dem Entspannen wird der jeweilige Wasserstoffdruck eingestellt und der Ansatz unter Rühren auf die entsprechende Reaktionstemperatur geheizt. Der Reaktionsdruck wird nach Einsetzen der Wasserstoffaufnahme konstant gehalten.

20

15

5

Die Reaktionszeit ist die Zeit vom Aufheizen des Ansatzes bis zur vollständigen Hydrierung des Polystyrols beziehungsweise die Zeit bis die Wasserstoffaufnahme ihrem Sättigungswert zustrebt.

Nach beendeter Reaktion wird die Polymerlösung filtriert. Das Produkt wird in Methanol gefällt und getrocknet. Das isolierte Produkt zeigt die in der Tabelle aufgeführten physikalischen Eigenschaften.

Tabelle 1: Physikalische Charakterisierung der eingesetzten Katalysatoren

Metall- gehalt	%	0,5
spezifische Gesamt- ober- <u>flache (BET)</u> ²	m ² /g	11,9
mittlere Poren durchmesser l	Ą	2722
Porenvolumen für Porenduchmesser 1000 Å - 10000 Å/ gesamtes Quecksil- ber Porenvolumen (38 Å-15 μm)	%	63
N2 Porenvolumen für Porendurch- messer von <600 Å / gesamtes Quecksilber Poren- volumen	%	4
Quecksilber- Porenvolumen für Porendurch- messer von 1000 Å – 10000 Å	mm³/g	480
Stickstoff- Gesamtes Porenvolumen The Porenvolumen für messer von Porendurchmesser	mm³/g	191
Stickstoff- Porenvolumen für Porenduch- messer von < 600 Å	mm ³ /g	32
Katalysator- Nr.		

Engelhard De Meern, Niederlande, C 586-102, Palladium auf Aluminiumoxid Katalysator:

mittlere Porendurchmesser, gemessen nach Quecksilber Porosimetrie (DIN 66133)

spezifische Stickstoff Gesamtoberfläche nach Brunauer, Emmett und Teller (BET, DIN 66131, DIN 66132)

5

Tabelle 2

Hydrierung von Polystyrol in Abhängigkeit des Katalysators, Lösungsmittelsystems und der Reaktionstemperatur

Beispiel-	Katalysator	Polymer	Lösungs-	Katalysator	Reaktions-	H ₂ -Druck	Reaktions-	Hydrier-	Tg	Mw
ż	Nr. Masse	Masse	Mittel ³⁾	Masse	Temperatur		zeit	grad ⁴⁾	(DSC)	103
			m	00	ml g °C Bar min % °C g/mol	Bar	min	%	ပ	lom/g
	5 % Pt/SiO ₂	2001)	2300	13,5	150	875 (psig)	110	98,4 146,6	146,6	
Vergleich		_ ™~								
US-A		200000	СН							
5612422		g mol-1				-			·	
2	% 5'0	100,2 2)	300 CYH	12,5	200	100	130	100	100 147	171
erfindungs-	ď								-	
gemäß										

Polystyrol (\overline{M} w ~ 200.000 g mol⁻¹)

Polystyrol Type 158 k, Mw = 280.000 g/mol, BASF AG, Ludwigshafen, Deutschland

CYH = Cylcohexan

Ermittelt durch 1H-NMR Spektroskopie

4

Engelhard De Meern, Niederlande, Palladium auf Aluminiumoxid, C 586-102

WO 00/46259 - 12 - PCT/EP00/00576

Der Platin-Katalysator (Tabelle 2), der dadurch charakterisiert ist, daß 98 % des Porenvolumens einen Porendurchmesser größer 600 Å aufweist, hydriert Polystyrol bei 150°C nach 110 min nicht vollständig. (98,4 % Vergleichsbeispiel 1).

Der Platin-Katalysator gemäß Beispiel 5 aus US-A 5 612 422 führt zu einem ca. 20 %igen Abbau der Molekulargewichte $\overline{\rm M}_{\rm W}$.

Molekulargewichtsabbau führt insbesondere zu einer Verkleinerung des mittleren Molekulargewichts $\overline{M}_{\rm w}$ (US-A 5612422). Die erfindungsgemäße Hydrierung in Gegenwart des Aluminiumoxid Katalysators zeigt überraschenderweise auch bei hohen Reaktionstemperaturen keinen signifikanten Abbau des absoluten Molekulargewichts $\overline{M}_{\rm w}$.

10

15

20

25

Das absolute mittlere Molekulargewicht \overline{M}_w des hydrierten Produkts entspricht im Rahmen der Meßgenauigkeit dem Wert des eingesetzten Polystyrols.

Der spezielle Aluminiumoxid Katalysator der vorliegenden Erfindung zeigt gegenüber Vergleichsbeispiel 1 eine vergleichbare Reaktionszeit jedoch bei gleichzeitiger vollständiger Hydrierung, bei höherem Molekulargewicht des eingesetzten Polystyrols und höherer Polymerkonzentration.

Der Katalysator zeichnet sich durch eine 10-fach niedrigere Gewichtsmenge des Edelmetalls aus, welches zu einer signifikanten Reduktion der Rohstoffkosten führt und damit die Wirtschaftlichkeit des Hydrierverfahrens verbessert.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Hydrierung aromatischer Polymere in Gegenwart von Katalysatoren, wobei als Katalysator ein Metall oder Gemisch von Metallen der VIII. Nebengruppe des Periodensystems zusammen mit einem Träger aus Aluminiumoxid eingesetzt wird und das Porenvolumen der Porendurchmesser des Katalysators zwischen 1000 - 10000 Å, gemessen nach der Quecksilber-Porosimetrie, im allgemeinen 100 - 15 %, bezogen auf das gesamte Porenvolumen, gemessen nach der Quecksilber-Porosimetrie, beträgt.

10

5

- 2. Verfahren gemäß Anspruch 1, wobei das Porenvolumen 90 bis 20 %, bezogen auf das gesamte Porenvolumen, beträgt.
- Verfahren gemäß Anspruch 2, wobei das Porenvolumen 80 bis 25 %, bezogen
 auf das gesamte Porenvolumen, beträgt.
 - 4. Verfahren gemäß Anspruch 3, wobei das Porenvolumen 70 bis 30 %, bezogen auf das gesamte Porenvolumen, beträgt.
- Verfahren gemäß einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Katalysatoren ein Porenvolumen, gemessen nach der Stickstoffsorption von kleiner 10 % für Porendurchmesser kleiner 600Å aufweisen.
- 6. Verfahren gemäß einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Metalle ausgewählt sind aus Nickel, Platin, Ruthenium, Rhodium und Palladium.
- Verfahren gemäß einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, wobei das Verfahren in Gegenwart von für Hydrierreaktionen verwendbaren
 Lösungsmittel durchgeführt wird.

8. Verfahren gemäß einem oder mehreren der vorhergehenden Ansprüche, wobei der Katalysator eine Oberfläche größer 5 m²/g aufweist.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Internal Application No PCT/EP 00/00576

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 CO8F8/04 CO8F C08F8/00 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 7 C08F Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages Relevant to claim No. X EP 0 814 098 A (BASF AG) 1-8 29 December 1997 (1997-12-29) cited in the application abstract; claims 1-10 page 5, line 7,8 page 7, line 28-57 page 9, line 45-60 page 11, line 15-60 page 12, line 10-31,34-60 X EP 0 378 104 A (DOW CHEMICAL CO) 1,2,6,8 18 July 1990 (1990-07-18) abstract; claims 1-9 page 3, line 35-37,48-60 page 4; table 1 page 6, line 5 page 7, line 30 -/--Further documents are listed in the continuation of box C. X Patent family members are listed in annex. Special categories of cited documents: T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance cited to understand the principle or theory underlying the invention "E" earlier document but published on or after the international filing date "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such docu-"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or ments, such combination being obvious to a person skilled "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "&" document member of the same patent family Date of the actual completion of the international search Date of mailing of the international search report 14 April 2000 28/04/2000 Name and mailing address of the ISA Authorized officer European Patent Office, P.B. 5818 Patentiaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016 Bergmans, K

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Inte onal Application No PCT/EP 00/00576

C.(Continua	ation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE BELEVANT	PCT/EP 00	0/005/6
Category ?	Citation of document, with indication where appropriate, of the relevant passages		Relevant to claim No.
C.(Continua Category	Citation of document, with indication where appropriate of the relevant passages GB 2 011 911 A (JOHNSON MATTHEY CO LTD) 18 July 1979 (1979-07-18) page 1 - line 45-54 page 2, line 8-11 abstract; claims 1-8		

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

on patent family members

Internal Application No PC17EP 00/00576

Patent document cited in search repor	t	· Publication date		Patent family member(s)	Publication date
EP 0814098	A	29-12-1997	DE DE CN JP	19624485 A 19624835 A 1174753 A 10072377 A	02-01-1998 02-01-1998 04-03-1998 17-03-1998
EP 0378104	A	18-07-1990	US AT BR CA DE JP US	5028665 A 111110 T 9000066 A 2007317 A 69012151 D 2265647 A 5110779 A	02-07-1991 15-09-1994 16-10-1990 09-07-1990 13-10-1994 30-10-1990 05-05-1992
GB 2011911	Α	18-07-1979	BE DE GB JP NL	871348 A 2845615 A 2087403 A,B 54077689 A 7810461 A	15-02-1979 26-04-1979 26-05-1982 21-06-1979 24-04-1979

THIS PAGE OLD WE USERION

INTERNATIONALER PESHERCHENBERICHT

Inte. PCI/EP 00/00576

KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES C08F8/04 C08F8/00 Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK **B. RECHERCHIERTE GEBIETE** Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) IPK 7 C08F Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe) C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN Kategorie⁴ Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile Betr. Ansoruch Nr. X EP 0 814 098 A (BASF AG) 1-8 29. Dezember 1997 (1997-12-29) in der Anmeldung erwähnt Zusammenfassung; Ansprüche 1-10 Seite 5, Zeile 7,8 Seite 7, Zeile 28-57 Seite 9, Zeile 45-60 Seite 11, Zeile 15-60 Seite 12, Zeile 10-31,34-60 X EP 0 378 104 A (DOW CHEMICAL CO) 1,2,6,8 18. Juli 1990 (1990-07-18) Zusammenfassung; Ansprüche 1-9 Seite 3, Zeile 35-37,48-60 Seite 4; Tabelle 1 Seite 6, Zeile 5 Seite 7, Zeile 30 -/--Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu X Siehe Anhang Patentfamilie entnehmen Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft er-scheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist Datum des Abschlusses der internationalen Recherche Absendedatum des internationalen Recherchenberichts 14. April 2000 28/04/2000 Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Bevollmächtigter Bediensteter Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016 Bergmans, K

2

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

nte onales Aktenzeichen
PCT/EP 00/00576

Kategorie ³	Rezeichnung der Voröffentlicher		
	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kon	nmenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
	GB 2 011 911 A (JOHNSON MATTHEY CO LTD) 18. Juli 1979 (1979-07-18) Seite 1 - Zeile 45-54 Seite 2, Zeile 8-11 Zusammenfassung; Ansprüche 1-8		1-8
	-		

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die Selben Patentfamilie gehören

Interest les Aktenzeichen
PCT/EP 00/00576

	echerchenberich rtes Patentdokur		Datum der Veröffentlichung		litglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 	0814098	A	29-12-1997	DE DE CN JP	19624485 A 19624835 A 1174753 A 10072377 A	02-01-1998 02-01-1998 04-03-1998 17-03-1998
EP	0378104	A	18-07-1990	US AT BR CA DE JP US	5028665 A 111110 T 9000066 A 2007317 A 69012151 D 2265647 A 5110779 A	02-07-1991 15-09-1994 16-10-1990 09-07-1990 13-10-1994 30-10-1990 05-05-1992
GB	2011911	A	18-07-1979	BE DE GB JP NL	871348 A 2845615 A 2087403 A,B 54077689 A 7810461 A	15-02-1979 26-04-1979 26-05-1982 21-06-1979 24-04-1979

THIS PAGE BLANK (USPTO)

DM

VERTRAG ÜBER INTERNATIONALE ZUSAM SENARBEIT AUF DEN GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

REC'D 2 4 APR 200

WIPO

PCT

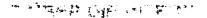
INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

	(Artikel 50 dild riegel 70 i 01)					
Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts Le A 33 510-WO KM	weiteres vorgehen siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416)					
	Internationales Anmeldedatum(Tag/Monat/Jahr) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag)					
Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/00576	26/01/2000 05/02/1999					
Internationale Patentklassifikation (IPK) ode C08F8/04	er nationale Klassifikation und IPK					
Anmelder						
BAYER AKTIENGESELLSCHAFT	et al.					
	rüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten melder gemäß Artikel 36 übermittelt.					
2. Dieser BERICHT umfaßt insgesar	mt 4 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.					
Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT)						
Diese Anlagen umfassen insgesamt Blätter.						
3. Dieser Bericht enthält Angaben zu	•					
I ⊠ Grundlage des Berich	its					
	s Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit					
IV MangeInde Einheitlich						
V ⊠ Begründete Feststellu	ung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der dbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung					
VI ☐ Bestimmte angeführte	e Unterlagen					
VII 🔲 Bestimmte Mängel de	er internationalen Anmeldung					
VIII □ Bestimmte Bemerkun	ngen zur internationalen Anmeldung					
Datum der Einreichung des Antrags	Datum der Fertigstellung dieses Berichts					
01/08/2000	20.04.2001					
Name und Postanschrift der mit der internat Prüfung beauftragten Behörde:	tionalen vorläufigen Bevollmächtigter Bediensteter					
Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 5236	Boletti, C					
Fax: +49 89 2399 - 4465	Tel. Nr. +49 89 2399 8527					

127000109

THIS PAGE BLANK (USPTO)



INTERNATIONALER VORLÄUFIGER **PRÜFUNGSBERICHT**

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/00576

I.	Grundlage d s Berichts							
1.	sichtlich der Bestandteile der internationalen Anmeldung (<i>Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine</i> forderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich gereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)): schreibung, Seiten:							
	1-12	2 ursprüngliche Fassung						
Patentansprüche, Nr.:								
	1-8	ursprüngliche Fassung						
2. Hinsichtlich der Sprache: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, ir die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sof unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist. Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um								
							die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).	
		die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).						
		die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).						
3.	Hin: inte	sichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten Nucleotid- und/oder Aminosäuresequ nz ist die irnationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:						
		in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.						
		zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.						
		bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.						
		bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.						
		Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den						

Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

Beschreibung,	Seiten
Ansprüche,	Nr.:
Zeichnungen,	Blatt:

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER **PRÜFUNGSBERICHT**

I DESCRIPTION OF THE PARTY OF T

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/00576

Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen;sie sind diesem Bericht beizufügen).

- 6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:
- V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- 1. Feststellung

Neuheit (N)

Ansprüche

Nein: Ansprüche 1

Erfinderische Tätigkeit (ET)

Ansprüche Ja:

Nein: Ansprüche 2-8

Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)

Ansprüche 1-8 Ja:

Nein: Ansprüche

2. Unterlagen und Erklärungen siehe Beiblatt

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PUNKT V

Es wird auf folgendes Dokument verwiesen:

D1: EP-A-0378104 (s. Ansprüche 4, 6-10; S. 3, Z. 48-50; Träger SCM-9X am S. 4; S. 6, Z. 5; Beispiel 6)

Der Gegenstand des vorliegenden Anspruchs 1 ist nicht neu im Sinne des Artikels 33(2) PCT, da er aus der D1 bereits bekannt ist.

Der Gegenstand der Ansprüche 2 bis 8 ist entweder aus D1 bereits bekannt oder beruht nicht auf einer erfinderischen Tätigkeit (Art. 33(3) PCT), weil die beanspruchten Maßnahmen für den Fachmann eine übliche Praxis darstellen.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PATENT COOPERATION TREATY

Translation

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference Le A 33 510-WO	FOR FURTHER ACTIO	RTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)					
International application No.	International filing date (date		Priority date (day/month/year)				
PCT/EP00/00576	26 January 2000 (05 February 1999 (05.02.99)				
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C08F 8/04							
Applicant ,	BAYER AKTIENGES	ELLSCHAFT	[
This international preliminary exart Authority and is transmitted to the appropriate to the appropriat	nination report has been poplicant according to Article	repared by this 36.	International Preliminary Examining				
2. This REPORT consists of a total of	4 sheets, inclu	ding this cover	sheet.				
This report is also accompan been amended and are the ba (see Rule 70.16 and Section	sis for this report and/or she	ets containing r	tion, claims and/or drawings which have ectifications made before this Authority the PCT).				
These annexes consist of a to	otal of sheets						
3. This report contains indications relati	ing to the following items:						
Basis of the report							
II Priority	<i>:</i>		,				
III Non-establishment	of opinion with regard to no	velty, inventive	step and industrial applicability				
IV Lack of unity of inv	ention						
V Reasoned statemen citations and explan	t under Article 35(2) with re nations supporting such state	gard to novelty, ment	inventive step or industrial applicability;				
VI Certain documents	cited						
VII Certain defects in the	ne international application	•					
VIII Certain observations on the international application							
Date of submission of the demand	Date	Date of completion of this report					
01 August 2000 (01.08	01 August 2000 (01.08.00) 20 April 2001 (20.04.2001)						
Name and mailing address of the IPEA/EP	Auth	orized officer					
Facsimile No.	Tele	phone No.					

The second secon

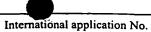
The general of the second

Tanin Tanin	1.1				-·
***	An in the Property of the Prop		20.72.2	10 To	e de la companya de La companya de la co
in Maner		The state of the s			
			y 1 1	٧,	The state of the s
		$\cdot j$:			Same Same His Contraction
		and the second second	- % /# ///		
		Control of the before			
		Land Bar Salah			
		the tride	1.		Part of the second
	,	*		and the second	
		F		•	
•		the two little		٠, ١	
		TO SHIP OF	u .	٠	
		7 10 10 10		e en en	
		The Armed Box	•	•	
	<u> </u>	r turbia.		• . • •	
					9

THIS PAGE BLANK (USPTO)

And the property of the proper

Carried States of the Asian



INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

PCT/EP00/00576

This report has been drawn on the basis of (Replacement sheats which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 err referred to in this report a "originally filled" and are not consisted to the report since they do not contain amendments.): the international application as originally filled. the description, pages	Basis of the report		
the description, pages 1-12 , as originally filed, pages . , filed with the demand, pages . , filed with the letter of pages . , filed with the letter of . , filed with the letter of , as originally filed, Nos , as amended under Article 19, Nos , filed with the demand, Nos , filed with the letter of	This report has been drawn under Article 14 are referred to	on the basis of (Replacement sheet o in this report as "originally filed"	ts which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation and are not annexed to the report since they do not contain amendments.):
the description, pages 1-12 , as originally filed, pages . , filed with the demand, pages . , filed with the letter of pages . , filed with the letter of . , filed with the letter of , as originally filed, Nos , as amended under Article 19, Nos , filed with the demand, Nos , filed with the letter of	the internationa	al application as originally filed.	
pages			as originally filed.
pages	· ·		
the claims, Nos. 1-8 , as originally filed, Nos. , as amended under Article 19, Nos. , filed with the demand, Nos. , filed with the letter of Nos. , filed with the letter of the drawings, sheets/fig , as originally filed, sheets/fig , filed with the letter of the description, pages , filed with the letter of The amendments have resulted in the cancellation of: the description, pages the claims, Nos. the drawings, sheets/fig This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).			- · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·
Nos, as amended under Article 19, Nos, filed with the demand, Nos, filed with the letter of			
Nos, as amended under Article 19, Nos, filed with the demand, Nos, filed with the letter of		1.0	-
Nos, filed with the demand, Nos, filed with the letter of	the claims,		
Nos, filed with the letter of			
Nos, filed with the letter of			
the drawings, sheets/fig, as originally filed, sheets/fig, filed with the demand, sheets/fig, filed with the letter of sheets/fig, filed with the letter of The amendments have resulted in the cancellation of: the description, pages	, , , , , , , , , , , , , , , , , , ,		
sheets/fig, filed with the demand, sheets/fig, filed with the letter of sheets/fig, filed with the letter of sheets/fig, filed with the letter of The amendments have resulted in the cancellation of:	· ·	1103.	_ , fried with the letter of
sheets/fig	the drawings,	sheets/fig	_ , as originally filed,
sheets/fig, filed with the letter of The amendments have resulted in the cancellation of: the description, pages the claims, Nos the drawings, sheets/fig This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).		sheets/fig	_ , filed with the demand,
The amendments have resulted in the cancellation of: the description, pages the claims, Nos the drawings, sheets/fig This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).			
the description, pages the claims, Nos the drawings, sheets/fig This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).		sheets/fig	, filed with the letter of
This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).			
This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).			
This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).	_	sheets/fig	
to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).	<u> </u>		
	This report has been e	established as if (some of) the an	nendments had not been made, since they have been considered
Additional observations, if necessary:	ge or joint and allow	iosaro as moa, as marcatea m di	e Supplemental Box (Rule 70.2(c)).
	Additional observations, if n	ecessary:	
			•
			•

16 . . . 87 B10 and you id a street with a new , G

in the second of the second of

To the second of the second

THIS PAGE BLANK (USPTO)

in a professional transfer of the contract of The Control of the Co rent entite (1975) et la rent de and the great section is the section of the section and the second of the second

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

Internal application No.
PCT/ÉP 00/00576

V.	Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability;
	citations and explanations supporting such statement

1.	Statement			
	Novelty (N)	Claims		YES
		Claims	1	NO
	Inventive step (IS)	Claims		YES
		Claims	2-8	NO
-	Industrial applicability (IA)	Claims	1-8	_ YES
		Claims		NO

2. Citations and explanations

Reference is made to the following document:

D1: EP-A-0 378 104 (see Claims 4 and 6-10; page 3, lines 48-50; support SCM-9X on page 4; page 6, line 5; and Example 6).

The subject matter of the present Claim 1 is not novel (PCT Article 33(2)), since it is already known from D1.

The subject matter of Claims 2 to 8 is either already known from D1 or does not involve an inventive step (PCT Article 33(3)), since the claimed measures are common practice for a person skilled in the art.

د والدور و السطاعيات الإسار والدور الرواد

 $\hat{r}_{3\cdot e^{e^{i}}}$

new and of the control of the property of the property of

Line Control of the State of th

Professional Company of the Company

The control of the co

THIS PAGE BLANK (USPTO)

era construir de la companya della c

en elegações de medite medite medição de la comparciátit fem let la la filma de participações de la comparció parent set order there a suppress for

The transfer was supplied to the transfer of the transfer of

The standard of the

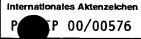
VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUDEM GEBIET DES PATENTWEITS

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts	T	siehe Mitteilung über di	ie Übermittlung des internationalen					
Le A 33 510-WO KM	Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit							
Internationales Aktenzeichen	Internationales Anmelo	ledatum	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr)					
PCT/EP 00/ 00576 (Tag/Monat/Jahr) 05/02/1999								
Anmelder	•							
BAYER AKTIENGESELLSCHAFT								
Dieser internationale Recherchenbericht wurd Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Int			rstellt und wird dem Anmelder gemäß					
Dieser internationale Recherchenbericht umfa	nßt insgesamt 3	Blätter.						
l 555	-		Unterlagen zum Stand der Technik bei.					
			<u> </u>					
Grundlage des Berichts								
 a. Hinsichtlich der Sprache ist die inte durchgeführt worden, in der sie eing 			rnationalen Anmeldung in der Sprache anderes angegeben ist.					
Die internationale Recherch Anmeldung (Regel 23.1 b))		iner bei der Behörde ein	gereichten Übersetzung der internationalen					
b. Hinsichtlich der in der internationale Recherche auf der Grundlage des S	n Anmeldung offenbarter Sequenzprotokolls durchg	n Nucleotid- und/oder / jeführt worden, das	Aminosäuresequenz ist die internationale					
in der internationalen Anmel	ldung in Schriflicher Form	n enthalten ist.						
zusammen mit der internation	onalen Anmeldung in con	nputerlesbarer Form eing	gereicht worden ist.					
bei der Behörde nachträglich	h in schriftlicher Form ein	igereicht worden ist.						
bei der Behörde nachträglich	•	•						
Die Erklärung, daß das nacl internationalen Anmeldung i	nträglich eingereichte sch im Anmeldezeitpunkt hina	nriftliche Sequenzprotoko ausgeht, wurde vorgeleg	oll nicht über den Offenbarungsgehalt der it.					
Die Erklärung, daß die in co wurde vorgelegt.	mputerlesbarer Form erfa	aßten Informationen dem	n schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen,					
2. Bestimmte Ansprüche hat	en sich als nicht reche	rchlerbar erwlesen (sie	ehe Feld I).					
3. Mangelnde Einheltlichkelt	der Erfindung (siehe Fe	eld II).						
4. Hinsichtlich der Bezelchnung der Erfin	dung							
X wird der vom Anmelder eing	ereichte Wortlaut genehr	migt.						
wurde der Wortlaut von der								
5. Hinsichtlich der Zusammenfassung								
	ereichte Wortlaut nanahr	miat						
wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt. wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.								
6. Folgende Abbildung der Zelchnungen i	st mit der Zusammenfass	sung zu veröffentlichen:	Abb. Nr					
wie vom Anmelder vorgesch	nlagen		keine der Abb.					
weil der Anmelder selbst kei	ne Abbildung vorgeschla	gen hat.	_					
weil diese Abbildung die Erfi	indung besser kennzeich	net.						

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT



		P P 00	0/00576			
A. KLASSI IPK 7	IFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES C08F8/04 C08F8/00					
	, sternationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Kla	assifikation und der IPK				
	RCHIERTE GEBIETE					
Recherchie IPK 7	rter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymb C08F	ole)				
Recharchie	rte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, so	oweit diese unter die recherchierten Gebiet	e fallen			
Ì						
Während de	er internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (f	Name der Datenbank und evtl. verwendete	Suchbegriffe)			
,						
C. ALS WE	SENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN					
Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angab	e der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.			
х	EP 0 814 098 A (BASF AG) 29. Dezember 1997 (1997-12-29)		1-8			
X	in der Anmeldung erwähnt Zusammenfassung; Ansprüche 1-10 Seite 5, Zeile 7,8 Seite 7, Zeile 28-57 Seite 9, Zeile 45-60 Seite 11, Zeile 15-60 Seite 12, Zeile 10-31,34-60 EP 0 378 104 A (DOW CHEMICAL CO) 18. Juli 1990 (1990-07-18) Zusammenfassung; Ansprüche 1-9 Seite 3, Zeile 35-37,48-60 Seite 4; Tabelle 1 Seite 6, Zeile 5 Seite 7, Zeile 30	-/	1,2,6,8			
entne	ere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu ehmen	X Siehe Anhang Patentfamilie				
aber ni "E" älteres [Anmeld "L" Veröffen scheine andere soll ode ausgef "O" Veröffer dem be Datum des A	 *A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist *E* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist *L* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhalt erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) *O* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht *P* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist *Datum des Abschlusses der internationalen Recherche *April 2000 *der dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondem nur zum Verständnis des der Effindung zugründeliegenden Prinzips oder der ihr zugründeliegenden Prinzips oder der beanspruchte Friindung var Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung vor besonderer Bedeutung					
_	Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2	Bevollmächtigter Bediensteter				
	NL – 2280 HV Rijswijk Tel. (+31–70) 340–2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31–70) 340–3016	Bergmans, K				

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGES egorie® Bezeichnung der Veröffentlichun	g, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht komm	nenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
, Dozolowany der Verone mid lum	g, 55.50 one sound. Green Angabe del III Dellacification		Dod. Arspideli NI.
Seite 1 - Zeile Seite 2, Zeile	(JOHNSON MATTHEY CO LTD) 1979-07-18) 45-54 8-11 ; Ansprüche 1-8		1-8
	•		
		÷	

Internationales Aktenzeichen

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

information on patent family members

International Application No
P 00/00576

mily Publication date

		atent document d in search report		Publication date		Patent family member(s)		Publication date
e)	EP	0814098	A	29-12-1997	DE DE CN JP	19624485 19624835 1174753 10072377	A A	02-01-1998 02-01-1998 04-03-1998 17-03-1998
	EP	0378104	Α	18-07-1990	US AT BR CA DE JP US	5028665 111110 9000066 2007317 69012151 2265647 5110779	T A A D A	02-07-1991 15-09-1994 16-10-1990 09-07-1990 13-10-1994 30-10-1990 05-05-1992
	GB	2011911	Α	18-07-1979	BE DE GB JP NL	871348 2845615 2087403 54077689 7810461	A A,B A	15-02-1979 26-04-1979 26-05-1982 21-06-1979 24-04-1979